METHOD OF AND DEVICE FOR SELECTIVELY PHOTOIONIZING MERCURY ISOTOPE

Patent number:

JP11099320

Publication date:

1999-04-13

Inventor:

BUURMAN ERIK PIETER; BENTE ERWIN ANTONIUS

JOSEPHUS; HOGERVORST WILLEM

Applicant:

URENCO NEDERLAND BV

Classification:

- international:

B01D59/34

- european:

B01D59/34

Application number: JP19980163970 19980611 Priority number(s): NL19971006285 19970611

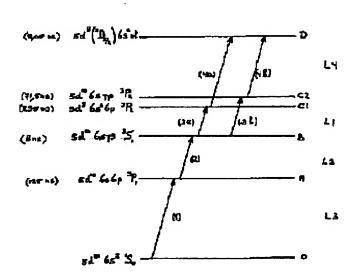
Report a data error here

Also published as:

EP0884095 (A1) NL1006285C (C2)

Abstract of JP11099320

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method and a device for selectively photoionizing mercury isotopes so that the ionization at specified laser intensity proceeds in as high a degree as possible. SOLUTION: In this method, an isotope selective photoinization process of for stages for selectively ionizing the mercury isotope - 196 is used. In this case, mercury is made in the form of atomic vapor, and the photoinization is performed by irradiating the isotope with photons whose wavelength is set so that the isotope continuously attains from a base state to a first excitation level, 5d<10> 6s6p<3> P1 (A), a second excitation level, 5d<10> 6s7s<3> S1 (B), a third excitation level, 5d<9> 6s<2> 6p<3> P2 (C1) or 5d<10> 6s7p<3> P2 (C2), and finally an automatic ionization level, 5d<9> (<2> D5/2) 6s<2> nl (D).



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-99320

(43)公開日 平成11年(1999)4月13日

(51) Int.Cl.⁶

識別記号

B01D 59/34

FΙ

B01D 59/34

В

審査請求 未請求 請求項の数24 OL (全 14 頁)

(21)出願番号	特願平10-163970	(71)出願人	598077347
			ユーレンコ、ネーダーラント、ベスローテ
(22)出顧日	平成10年(1998) 6月11日		ン、フェンノートシャップ
			Urenco Nederland B.
(31)優先権主張番号	1006285		V.
(32)優先日	1997年6月11日		オランダ、7601、ペイェ、アルメロ、プラ
(33)優先権主張国	オランダ(N L)		ントホフスヴェク、77
		(72)発明者	エリク、ピーター、ビュールマン
			オランダ、5506、エエ、ヴェルトホーヴェ
			ン、ネイヴァーハイツラーン、30
		(74)代理人	弁理士 田代 烝治 (外1名)
		l l	

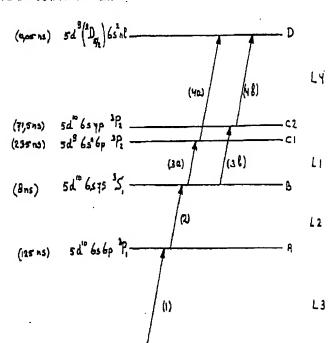
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 水銀の同位体を選択的に光イオン化するための方法および装置

(57)【要約】

【課題】 水銀の同位体を選択的にイオン化するための 方法および装置を提供することである。

【解決手段】 この課題は、水銀の同位体 196を選択的にイオン化するための 4 段階の同位体選択光イオン化プロセスによって解決される。この場合には水銀は、原子蒸気の形状になされ、同位体が、基底状態から第一の励起レベルである 5 d 10 6 s 6 p 3 P $_{1}$ (A) と、第二の励起レベルである 5 d 10 6 s 7 s 3 S $_{1}$ (B) と、第三の励起レベルである 5 d 9 6 s 2 6 p 3 P $_{2}$ (C 1) または 5 d 10 6 s 7 p 3 P $_{2}$ (C 2) と、最終的に自動イオン化レベルである 5 d 9 (2 D $_{5/2}$) 6 s 2 n I (D) に、連続的に到達するように、波長が設定される光子によって照射されることによって行われる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 水銀が原子蒸気の形態になされ、且つ水銀蒸気が少なくとも四種の異なる波長を包含する放射線に曝されて、同位体が基底状態から連続的に4段の励起段階、すなわち、当該同位体が基底状態から第一の励起レベル5 d l 6 s 6 p l (A)に到達する第二の励起レベル5 d l 6 s 7 s l 5 l (B)に到達する第二の励起レベル5 d l (B)に到達する第三の励起レベル(C1:C2)に到達する第三の励起レベル(C1:C2)に到達する第三の励起レベル(C1:C2)に到達する第三の励起レベル(C1:C2)に到達する第三の励起レベル(C1:C2)に到達する第三の励起レベル(C1:C2)に到達する第三の励起とを連続的に経過するように、上記の波長が選定される、水銀の同位体を選択

的に光イオン化するための方法。 【請求項2】 第三の励起レベル(C1)が、5 d⁹ 6

【請求項2】 第三の励起レベル(C1)が、5 d^{3} 6 s^{2} 6 p^{3} P₂ なる構造を有する、請求項1による方法。

【請求項3】 当該同位体が 196 Hgであり、第一の励起レベル(A)のエネルギーが、ほぼ39412.597cm⁻¹であり、第二の励起レベル(B)のエネルギーが、ほぼ62350.6cm⁻¹であり、第三の励起レベル(C1)のエネルギーが、ほぼ68886.4cm⁻¹であり、第四の励起レベル(D)のエネルギーが、ほぼ11078.3cm⁻¹である、請求項2による方法。【請求項4】 当該放射線が、波長が実質的に253.726nmに等しい光子と、波長が実質的に253.726nmに等しい光子と、波長が実質的に237.0042nmに等しい光子と、波長が実質的に237.007nmに等しい光子とを含んでいる、請求項3による方

【請求項5】 第三の励起レベル(C2)が、 $5d^{10}$ 6 $s7p^{3}P_{2}$ なる構造を有する、請求項1による方法。

【請求項6】 当該同位体が 196 Hgであり、第一の励起レベル (A) のエネルギーが、ほぼ39412.597cm⁻¹であり、第二の励起レベル (B) のエネルギーが、ほぼ62350.6cm⁻¹であり、第三の励起レベル (C1) のエネルギーが、ほぼ71207.6cm⁻¹であり、第四の励起レベル (D) のエネルギーが、ほぼ11078.5cm⁻¹である、請求項5による方法。【請求項7】 当該放射線が、波長が実質的に253.726nmに等しい光子と、波長が実質的に435.957nmに等しい光子と、波長が実質的に1129.056nmに等しい光子と、波長が実質的に250.804nmに等しい光子とを含んでいる、請求項6による方法。

【請求項8】 イオン化された同位体が、イオン化されていない同位体から電場によって分離されている、前記請求項のいずれか一による方法。

【請求項9】 レーザー光源システムが、第三の励起段 階を達成するに適した光子(L1)を発生させるための 第一のレーザー光源(10:310)と、第二の励起段 階を違成するに適した光子(L2)を発生させるための 第二のレーザー光源(20:320)と、第一の励起段 階を違成するに適した光子(L3)を発生させるための 第三のレーザー光源(30;330)と、第四の励起段 階を達成するに適した光子(L4)を発生させるための 第四のレーザー光源(40;340)とから構成され、 第一のレーザー光源(10:310)が、第一の整調さ れたOPO(光パラメトリック発振器)(11:31 1) から成り、第二のレーザー光源(20:320) が、第二の整調されたOPO(21:321)から成 り、第三のレーザー光源(30:330)が、第三の整 調されたOPO(31:331)から成り、第四のレー ザー光源(40:340)が、第四の整調されたOPO (41:341)から成り、且つまた当該4種のレーザ 一光源(10、20、30、40;310、320、3 30、340)が、共通のポンプレーザー光源(2)か ら来るポンプ光(P1、P2、P3、P4)によってポ ンピングされる、前記請求項のいずれか一による方法に おいて使用するに適した光子を発生させるためのレーザ 一光源システム(1:301)。

【請求項10】 第一のOPO(11)が1530.0 4 nmに整調されており、第二のOPO(21)が43 5. 957 n m に 整調されており、 第三の O P O (3) 1) が761. 178 nmに整調されており、且つ第四 のOPO(41)が711.03mmに整調されてお り、また、第三のレーザー光源(30)が、更に第三の OPO (31) から来る光を受容し、且つこれを25 3. 726 nmに転換するTHG (第三高調波発生器) (36)から成り、第四のレーザー光源(40)が、更 に第四のOPO(41)から来る光を受容し、且つこれ を237.01nmに転換するTHG(46)から成 る、請求項9によるレーザー光源システム(1)。 【請求項11】 第一のOPO(11)が1129.0 6 nmに整調されており、第二のOPO(21)が43 5. 957 nmに整調されており、第三のOPO(3) 1) が761. 178 nmに整調されており、且つ第四 のOPO(41)が752.43nmに整調されてお り、また、第三のレーザー光源(30)が、更に第三の OPO(31)から来る光を受容し、且つこれを25 3. 726 nmに転換するTHG (36) から成り、第 四のレーザー光源(40)が、更に第四のOPO(4 1) から来る光を受容し、且つこれを250.81nm に転換するTHG (46) から成る、請求項9によるレ ーザー光源システム(1)。

【請求項12】 第一のOPO(311)が1530. 04nmに整調されており、第二のOPO(321)が 435. 957nmに整調されており、第三のOPO (331) が507. 452 nmに整調されており、且つ第四のOPO(341) が474. 02 nmに整調されており、また、第三のレーザー光源(330) が、更に第三のOPO(331) から来る光を受容し、且つこれを253. 726 nmに転換するSHG(第二高調波発生器)(336) から成り、第四のレーザー光源(340) が、更に第四のOPO(341) から来る光を受容し、且つこれを237. 01 nmに転換するSHG(346) から成る、請求項9によるレーザー光源システム(310)。

【請求項13】 第一のOPO(311)が1129. 06nmに整調されており、第二のOPO(321)が435.957nmに整調されており、第三のOPO(331)が507.452nmに整調されており、且つ第四のOPO(341)が501.62nmに整調されており、また、第三のレーザー光源(330)が、東に第三のOPO(331)から来る光を受容し、且つこれを253.726nmに転換するSHG(336)から成り、第四のレーザー光源(340)が、更に第四のOPO(341)から来る光を受容し、且つこれを250.81nmに転換するSHG(346)から成る、請求項9によるレーザー光源システム(310)。

【請求項14】 ポンプレーザー光源(2)が、第一の OPO (11) にポンピングするためのほぼ1064n mの波長の第一のポンプ光(P1)を供給するためのN d:YAGレーザーであり、ポンプレーザー光源(2) によって発生される光の第一の部分(P1.1)が、第 二のOPO(21)をポンピングするために、この受容 された光 (P1.1) を、ほぼ355nmの波長の第二 のポンプ光 (P2) に転換するTHG(23) に与えら れ、ポンプレーザー光源(2)によって発生される光の 第二の部分 (P1. 2) が、この受容された光 (P1. 2) を、ほぼ532nmの波長の光(P1.2) に転換 するSHG (33) に供給され、SHG (33) によっ て生成される光の一部が、第三のOPO (31)をポン ピングするための第三のポンプ光(P3)として機能 し、SHG(33)によって生成される光の他の部分 が、第四のOPO(41)をポンピングするための第四 のポンプ光 (P3) として機能する、請求項9から13 のいずれか一によるレーザー光源システム。

【請求項15】 ポンプレーザー光源(2)が、受容された光をほぼ355nmの波長のポンプ光(P)に転換するTHG(303)に与えられる、ほぼ1064nmの波長の光を供給するためのNd:YAGレーザーであり、THG(303)によって供給されるポンプ光

(P) が、それぞれ第一のOPO(311)、第二のOPO(321)、第三のOPO(331)、および第四のOPO(341)をポンピングするために、適切な方法で4種類のポンプビーム(P1、P2、P3、P4)に分割される、請求項9から13のいずれかーによるレ

ーザー光源システム。

【請求項16】 生成された光子(L1、L2、L3、L4)の相対的強度が実質的に当該励起段階の遷移確率の相互の差異を補償するように、4種のポンプビーム(P1、P2、P3、P4)の相対的な強度が設定される、請求項9から15のいずれかーによるレーザー光源システム。

【請求項17】 最初の三つの励起段階のための3種の 光ビーム(L1、L2、L3)が、第一の方向に直線偏 光され、第四の励起段階のための第四の光ビーム(L 4)が、第一の方向に対して垂直な第二の方向に直線偏 光される、請求項9から16のいずれかーによるレーザ 一光源システム。

【請求項18】 壁部(111:411)によって包囲され、且つ相互作用領域(113:413)から成るイオン化スペース(110:410)と、水銀原子を発生させ且つそれを相互作用領域(113:413)に供給するために、イオン化スペース(110:410)の下に配置される、少なくとも一つの線源(120:420)と、相互作用領域(113:413)を通過した水銀原子を線源(120:420)に戻すための手段(11、112、414)と、当該励起段階をもたらすに適した光子を生成するためのレーザー光源システム

(1)であって、当該光子が実質的に水平方向に相互作用領域(113;413)をトラバースするように、配置されているレーザー光源システム(1)と、光子の移動の方向に対して垂直な水平方向に電場を発生させるための電気式抽出手段(130)とから構成される、請求項1から8のいずれかーによる方法を実施するためのセパレータ(100;400)。

【請求項19】 ケーシング(111:411)が、長く延びた水平に案内されたチューブの形状を有し、光子の移動する方向が当該チューブ(111:411)の長手方向に対して平行であり、且つ一又は複数の線源(120:420)が当該チューブ(111:411)に沿って配置されている、請求項9によるセパレータ。

【請求項20】 吸収されずに相互作用領域(113;413)を横断した光子を遮るための鏡から成り、当該鏡が遮断された光子を当該相互作用領域(113;413)、または第二のイオン化スペース(110:410)の相互作用領域へ反射する、請求項18または19によるセパレータ。

【請求項21】 抽出手段(130)が、相互作用領域(113)と並んで配置された陽極(131)と、陽極(131)と向き合って配置された負の電圧が与えられる加速器グリッド(132)と、加速器グリッド(132)の背後に配置された捕集板(133)とから成り、当該捕集板(133)の電圧が加速器グリッド(132)の電圧よりも負性が少ない、請求項18-20のいずれかーによるセパレータ。

【請求項22】 当該チューブ(411)に沿って配置された捕集チャンバ(430)から成り、当該捕集チャンパ(430)が連絡チャンネル(440)によってイオン化スペース(410)に接続され、更に連絡チャンネル(440)を選択的に開閉するためのバルブ(441)から成り、抽出手段が、相互作用領域(413)から連絡チャンネル(440)を介して捕集チャンバ(430)にイオン化された水銀原子を案内するように配置されている、請求項18-20のいずれかーによるセパレータ(400)。

【請求項23】 捕集チャンバ(430) 内に水銀原子を捕捉するための捕集スクリーン(432) が配置され、捕集された水銀原子が捕集スクリーン(432) 上に凍結するように、当該捕集スクリーン(432) が極めて低い温度で保持される、請求項22によるセパレータ(400)。

【請求項24】 捕集スクリーン (432) に凍結した水銀原子を蒸発させるために捕集スクリーン (432) が加熱され、且つ蒸発された水銀原子が低温に保たれた採取部材上に凝結することを可能とする、捕集スクリーン (432) に凍結した水銀原子を除去するための方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

[0003]

【発明の属する技術分野】公知のように、水銀は、天然には、同位体196、198、199、200、201、202、204のように、異なる同位体の混合物で見出される。天然の水銀においては、これらのの混合物中の単一の同位体の寄与分を変更する。この単一同位体の寄与分を増大させることが望まれるときは、これは選縮と呼ばれる。一般に、特部で望まれるときは、これは劣化と呼ばれる。一般には、特部ではまれるときは、これは劣化と呼ばれる。一般には、特部ではまるときは、これは劣化と呼ばれる。一般には、特部ではまるときは、これは劣化と呼ばれる。一般には、特部では、その処理の後に、二つの針とは、その結果として、濃縮と劣化は同一の貨幣の裏表としてこれを見ることが出来る。

【0002】更に詳細にいえば、 196 Hgの量が、約0.15%という天然に存在する量よりも大きな水銀については需要がある。その様な需要が存在する技術の分野における一例としては、水銀放電ランプの分野がある。水銀放電ランプの効率が、同位体196の寄与分が濃縮された水銀を採用することによって改善することが出来ることは、良く知られている。この関連では、例えば米国特許第4379252号明細書を参照されたい。

【従来の技術】従って、 196 Hgを、またはいずれにせ よ、天然の量よりも 196 Hgの量が大きな水銀を、量産 方式で製造する方法に対する需要がある。原則的には有 用であろうと思われる、さまざまな濃縮技術が知られている。これらの技術は、いずれも異なる同位体の物理的化学的特性が、わずかながらも異なる、という事実を基礎にするものである。このような技術の一例は、超遠心機を利用するものであって、質量における相互の差を基とするものである。これに関連した問題は、水銀が、このようにして設置される機械の材料とアマルガム化合物を形成する傾向があることである。

【 O O O 4 】可能な技術の他の一例は、塩化水銀が形成される場合の塩化水素酸との水銀の反応における反応率の相互の差を基とする化学的方法である。このような方法の不利な点は、続いて塩化水銀を、再び金属水銀に転換しなければならないことであって、これは費用のかかるプロセスである。それ故、水銀の化学的転移が生じないような濃縮プロセスを実現することが望ましい。

【0005】本発明は、同位体選択的光イオン化を利用 することを提案するものである。このような技術は、そ れ自体は公知のものであり、例えば国際特許第93/0 3826号明細書にガドリニウムに関して記載されてい る。この方法は、異なる同位体のエネルギーレベルは異 なるエネルギーを持っており、その結果として吸収スペ クトルが相互に異なるという事実に基づくものである。 同位体選択的光イオン化方法がどのようなものになるか を簡単に述べるならば、水銀が蒸気の状態になされ、蒸 気中の水銀原子が光子のビームによって照射されること である。光子を吸収することによって、水銀原子は、基 底状態から段階的な励起状態に励起され、最終的に自己 イオン化状態、すなわち原子が短時間の後にイオンと電 子に分解する状態に到達する。次いで電場によって、イ オンが蒸気から取り除かれ、その後に電子を捕獲するこ とによって、再び原子になることが出来る。目的に応じ て、取り除かれた原子は廃棄物とも、或いは望まれる産 物とも見なされる。

【0006】連続的な吸収段階をたどるためには、光子 (レーザー光) は正確に規定された波長を有することを必要とする。次いで光子の波長を、単一同位体のエネルギーレベルに合致するように正確に設定することが重要であり、その結果、その単一同位体の原子が優先的にイオン化されることになり、すなわち、他の同位体の原子が、たとえ多少はあったとしても、ほとんどこれらの光子を吸収せず、少なくとも、ほとんどこれによってイオン化されないということになる。

[0007]

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、イオン化が出来るだけ効率的に、すなわち特定のレーザー強度におけるイオン化度が出来るだけ高い形で進行するような、同位体選択的光イオン化の方法を提供することである。

【0008】本発明の今一つの目的は、要求される光子が相対的に廉価な形で生成可能であるような、同位体選

択的光イオン化の方法を提供することである。

【0009】更に詳細にいえば、本発明の目的は、経済的に有利な同位体選択的光イオン化法を提供することである。

[0010]

【課題を解決するための手段】本発明の、これらおよび その他の側面、特徴および利点は、以下において図面と の関連で行われる、本発明による方法の優れた実施形態 の記述において、これを明らかにするものとする。

[0011]

【発明の実施の形態】図1は、本発明の枠内で重要な、それぞれに0、A、B、C1、C2、およびDと符号を表示された水銀の6段階のエネルギーレベルを示す。

【0012】最も低いレベル、すなわち基底状態は、5 d 10 $6 s^{21} S_0$ なる電子構造を持っており、このレベルのエネルギーは0によって表示される。

【0013】次のレベルAは、 $5d^{10}$ $6s6P^{3}P_{1}$ なる電子構造を持っている。基底状態との関連におけるこのレベルAのエネルギーは、 196 Hgについては、およそ39412. 597 ± 0 . 002cm $^{-1}$ である。レベルAの寿命は

、 約125msである。

【0014】次のレベルBは、 $5d^{10}$ $6s7s^3S_1$ なる電子構造を持っている。このレベルBのエネルギーは、 196 Hgについては、およそ62350. $65\pm$ 0. $10cm^{-1}$ である。レベルBの寿命は

、約8nsで

ある。

【0015】第四のレベルC1は、 $5d^96s^26p^3$ P2なる電子構造を持っている。このレベルC1のエネルギーは、 196 Hgについては、およそ $68886.65\pm0.10cm^{-1}$ である。レベルC1の寿命は、約2

35 n s である。

【0016】第五のレベルC2は、 $5 d^{10} 6s7p^{3}P$ 2 なる電子構造を持っている。このレベルC2のエネルギーは、 196 Hgについては、およそ71207.61 $\pm 0.10 cm^{-1}$ である。レベルC2の寿命は、約7

1. 5 n s で ある。

、約

O. O5nsである。すなわち原子はレベルDに到達した後で、実質的に直接電子を1個放出し、イオンとして後に留まる。

【0018】4つのレベルA、B、C1およびC2と、

ガーシュテンコーンなどによる論文からも、それ自体公知である。現在までのところ、このレベルDは知られていない。

【0019】本発明は、二つの変形代案を含む4段階の光イオン化プロセスを提案する。本発明による光イオン化プロセスの第一の段階においては、水銀原子が基底状態からレベルA(図1の段階(1))に励起される。この目的のために、水銀原子は、波長が(真空中で)253.726±0.001nmの光子によって照射される

【 0 0 2 0】本発明による光イオン化プロセスの第二の 段階においては、水銀原子がレベルAからレベルB(図 1 の段階(2))に励起される。この目的のために

(真空中で) 435.957±0.01nmの波長を有する光子が必要とされる。

【0021】本発明による光イオン化プロセスの第三の段階においては、水銀原子がレベルBからレベルC1 (第一の変形代案、段階(3a))に励起されるか、またはレベルC2(第二の変形代案、段階(3b))に励起される。

【〇〇22】本発明による光イオン化プロセスの第四の段階においては、水銀原子がレベルC1またはレベルC2から、それぞれ自動イオン化レベルD(それぞれ段階(4a)および(4b))に励起される。

【0023】第一の変形については、(真空中での)波長がほぼ 1530.04 ± 0.01 nm ($B\rightarrow C1$)の光子、ならびに(真空中での)波長がほぼ 237.01 ± 0.01 nm ($C1\rightarrow D$)の光子が必要とされる。第二の変形については、(真空中での)波長がほぼ 1129.06 ± 0.01 nm ($B\rightarrow C2$)の光子、ならびに(真空中での)波長がほぼ 250.80 ± 0.01 nm ($C2\rightarrow D$)の光子が必要とされる。

【0024】もし、上記の波長のレーザービームが水銀同位体の雲の中に供給されると、同位体196は、上に記載した四つの連続的な励起段階をトラバースするの他のが出来、これによってイオン化がなされる。その他のバ銀原子は、これらの四つの連続的な励起段階をトラバースすることが出来ないか、または出来たとしてもずることが出来ないか、または出来たとしてもずることが出来ないがよりである。では、そのために必要な光子は別の波長を持つである。例として挙げるならば、そのために必要な光子は別の波長を持つである。の例として挙げるならば、おりないとのである。であり、その結果、この同位体をレベルトでは、レベルトのエネルギーは約39412.122cm⁻¹であり、その結果、この同位体をレベルトまで励起するためには、(真空中での)波長が253.729nmの光子が必要とされるのである。

【〇〇25】原則として、上記の四つの励起段階は、連続して水銀原子をトラバースする。この場合、それぞれの励起された状態A、B、C1およびC2の一つに到達した原子は、一定の滞留期間の後で、自然発生的な放出

によって後退するか、または次の光子を吸収することが 想像できる。一般には、連続する光子の間の時間間隔が 短くなるにつれて、励起プロセスは更に効率的に進行す る。何故ならば、時間間隔が短いことは、励起された原 子が次の段階へ励起される機会を増加させ、他方におい ては、原子が、自然の放出により励起されたレベルから 後退する機会が減少するからである。

【0026】上述の、異なる光子が同時に存在するときには、イオン化のプロセスの効率が最適であることが見出された。この条件は、原則として独立のレーザー装置によって発生させることが出来る連続的なビームを使用することによって満たすことが出来る。しかしながらられて、相対的に短いレーザーパルスを供給するためのパルス駆動式レーザー装置を使用する方が、更に有用である。その場合には、設定された時間評価基準を在りために、異なるレーザー装置の間に同期化が存用ければならない。問題のレベルの最短の寿命は8nsであるから、レーザーパルスは出来れば8nsよりも短いたが好ましく、4ns以下であれば更に好都合である。

【0027】図2は、適切な波長の4種のレーザーパルスを実際上同時に発生させることを可能にするレーザー 光源システムの、本発明により提案される配置の例を模式的に示したものである。

【0028】図2に記載されているレーザー光源システム1は、それぞれレーザービームL1、L2、L3、L4を発生させる4個のレーザー光源10、20、30、40から構成されており、その波長はそれぞれ約1530nm、436nm、254nmおよび237nmであり、その結果、それらの4本のレーザービームL1、L2、L3、L4は、第一の変形代案の4段階プロセスにおいて有用である。

【0029】第一のレーザー光源10は、波長153 0.042nmのレーザー光L1を供給するために正確 に整調された、KTP型の第一の光パラメトリック発振器(OPO)11から成る。第一の光パラメトリック発 振器(OPO)11は、第一のシードダイオードレーザー12から来るシード光S1によってシードがなされて おり、且つNd:YAGレーザー光源2から来るポンプ 光P1によってポンピングされている。レーザー光源2 から来るポンプ光P1の波長は、約1064nmである。

【0030】光パラメトリック発振器の性質および構造は本発明の主題を構成しないこと、およびその知識は、本発明を適当に理解するための技術に習熟した者には必要とされないので、これ以上の記述は行わないことにする。光パラメトリック発振器は、それ自体は公知であり、この技術に習熟した者には、どのようにすれば特に希望する波長を供給するために配置することが出来るかは明らかであることを述べることで十分である。図示さ

れた例については、オランダ特許出願第94.0062 8号を参照されたい。

【0031】第二のレーザー光源20は、波長435. 957nmのレーザー光L2を供給するために整調され た、BBO型の第二の光パラメトリック発振器(OP O) 21から成る。第二の光パラメトリック発振器(O PO) 211は、第二のシードダイオードレーザー22 から来るシード光S2によってシードがなされ、且つレ 一ザー光源2から来るポンプ光P1から導き出されるポ ンプ光P2によってポンピングがなされる。図示された 実施形態においては、ポンプ光P2は、入口でポンプ光 P1の一部を受容する第一の第三高調波発生器(TH G) 23によって供給され、その結果として、ポンプ光 P2の波長はほぼ255nmである。この目的のため に、図示された実施形態では、当該ポンプ光P1の第一 の部分P1. 1を第一のTHG23の入口に反射するた めに、ポンプ光P1の通路に第一の半透明な鏡24が配 置される。ポンプ光P2の通路に配置された鏡25によ って、レーザー光し2がレーザー光し1と平行に導かれ ることを確保することが出来るのである。

【0032】第三高調波発生器(THG)とは、入力レーザービームを受容し、且つ3で割られた入力レーザービームの波長に等しい波長の出力レーザービームを供給するために配置される装置である。このような装置の性質および構造は、本発明の主題を構成せず、またその知識は、本発明を適当に理解するための技術に習熟した者には必要とされないので、これ以上の記述は行わないことにする。このような装置は、それ自体公知であり、その使用はそれ自体公知のTHGによって行うことが出来ることを記すことで十分である。

【0033】第三のレーザー光源30は、約761.1 78 n mの波長のレーザー光を供するために整調される LBO型の第三のOPO31から構成される。このレー ザー光は、出力光し3が、それに応じて約253.72 6 nmの波長を持っている第二のTHG36に適用され る。第三のOPO31は、第三のシードダイオードレー ザー32から来るシード光S3によってシードされ、且 つレーザー光源2から来るポンプ光P1から導き出され るポンプ光P3によってポンピングされる。図示された 実施形態では、ポンプ光P3は、入口でポンプ光P1の 一部を受容する第一の第二高調波発生器(SHG)33 によって供給される。その結果、ポンプ光3の波長は約 532 nmである。この目的のために、図示された実施 形態では、当該ポンプ光P1の第二の部分P1. 2を第 一のSHG33の入口に反射するために、ポンプ光P1 の通路に第二の半透明な鏡34が配置されている。ポン プ光P3の通路に配置された鏡35によって、レーザー 光し3がレーザー光し1と平行に導かれることを確保す ることが出来る。

【0034】SHGとは、入力レーザービームを受容

し、且つ2で割られた入力レーザービームの波長に等しい波長の出力レーザービームを供するために配置される装置である。このような装置の性質および構造は、本発明の主題を構成せず、またその知識は、本発明を適当に理解するための技術に習熟した者には必要とされないので、これ以上の記述は行わないことにする。このような装置は、それ自体公知であり、その使用はそれ自体公知のSHGによって行うことが出来ることを記すことで十分である。

【0035】第4のレーザー光源40は、約711.0 20nmの波長のレーザー光を供給するために整調され たLBO型の第4のOPO41から成る。このレーザー 光は、出力光L4が約237. 007mmの波長を持つ た、第三のTHG46に適用される。第4のOPO41 は、第4のシードダイオードレーザー42から来るシー ド光S4によってシードされ、且つレーザー光源2から 来るポンプ光P1から導き出されるポンプ光P4によっ てポンピングされる。図示された実施形態では、第一の 第二高調波発生器(SHG)33によって提供される。 この目的のために、図示された実施形態では、鏡35は 半透明の鏡である。鏡35によって反射される部分は、 ポンプ光P3として機能するが、鏡35によって中継さ れる部分は、ポンプ光P4として機能する。レーザー光 L4がレーザー光L1に対して平行に導かれることを確 保するために、ポンプ光P4の通路に鏡45が配置され

【0036】図2は、本発明による第一の変形代案のために必要とされる4種の波長を、どのように発生させることが出来るかを単に図示したものである。第二の変形代案のために必要とされる4種の波長を、これに匹敵する方法で発生させることが出来ることは、当該技術に習熟した者には明らかである。この目的のために、例えば、第一のOPO11は、約1129.056nmに整調するために修正することが出来、且つ第4のOPO41は、約752.413nmに整調するために修正することが出来る。

【0037】シードダイオードレーザーの性質および構造は、本発明の主題を構成せず、その知識は、本発明の主題を構成せず、その知識は必要とされないので、これ以上の記述は行わないことにする。 A S L I N C F V A T A F V D であることでは、おような材料の層の構造として製造される習熟した者のの表であるように、材料、および層厚および層の連続のの当なように、材料、および層厚および層の連続のの当なように、材料、および層厚および層の連続のであるように、材料、および層厚および層の連続のでである。でではよいである。でではよいである。かくて第一のシードダイオードレーザー3とは、約1530.042 n m の である。第三のシードダイオードレーザー3とは、約76

1. 178nmの波長と数mワットの電力のシード光S3を発生させるために配置される。そして第4のシードダイオードレーザー42は、約711.020nmの波長と数mワットの電力のシード光S4を発生させるために配置される。

【0038】現在までのところ、在来の技術によっては、620nmよりも低い波長で光を発生させるシードダイオードレーザーは、成功裡に製造されていない。第二のOPO21に関しては、シード光S2は、約435.957nmの波長を持つべきである。図示された実施形態では、これは、第二のシードダイオードレーザー22が、約871.973nmの波長と数mワットの電力のシード光S2'を発生させるために配置されることで行われる。この光は第二のSHG26に適用され、これがその出口において要求されるシード光S2を供給する。

【0039】4種のレーザービームL1ないしL4の強度は、互いに等しくないことが望ましい。これは、既述の4つの励起段階遷移確率が、互いに相違するという事実に関連する。遷移確率が相対的に小さい励起段階については、レーザービームの強度は、要求される同位体 Hgが出来るだけ多くイオン化されることを確保するために、相対的に高くなるように選定されなければならない。優先されるのは、4種のレーザービームL1、L2、L3、L4の強度の割合が、第一の励起形態については、約2:1:7:14になるように設定されることである。

【0040】イオン化プロセスが効率的に進行するためには、基底状態から計算して、およそ 120μ J/cm²が必要である。従って、4種のレーザービームし1ないしし4の強度は、少なくとも<math>10、5、35、 70μ J/cm²であることが望ましい。しかしながら、利用可能な全エネルギーが約 200μ J/cm²であるように、上記の割合を維持しながら、上記の強度を十分に高く選定することが望ましい。

【0041】図3は、とりわけ本発明による、4種のレーザーパルスを実際上同時に発生させるための配置を模式的に示すものである。

【0042】図3に図示されたレーザー光源システム301は、4種のレーザービームし1、L2、L3、L4が、第一の実施形態代案の4段階プロセスにおいて有用であるような、波長がそれぞれに、およそ1530nm、436nm、254nm、および237nmであるようなレーザービームし1、L2、L3、L4をそれぞれ発生させる、4つのレーザー光源310、320、330、340から構成されている。

【0043】図3のレーザー光源システム301は、大きくいって図2のレーザー光源システム1に類似のものである。この理由から、レーザー光源システム301についての記述は、レーザー光源システム1の記述よりも

少なくとどめる。第一のレーザー光源310は、波長が 約1530.042nmのレーザー光L1を供給するよ うに正確に整調された第一のOPO311から成る。第 二のレーザー光源320は、波長が約435.957n mのレーザー光し2を供給するように整調された第二の OPO321から成る。第三のレーザー光源330は、 波長が約507. 452 nmのレーザー光を供給するよ うに整調された第三のOPO331から成る。このレー ザー光は、出口光L3が約253.726nmの波長を 有するSHG336に適用される。第4のレーザー光源 340は、波長が約474.013 nmのレーザー光を 供給するように整調された第4のOPO341から成 る。従ってこのレーザー光は、出口光L4が約237. 007nmの波長を有するSHG346に適用される。 【0044】この場合には、4つの0P0311、32 1、331、341は、それ自体公知のタイプであるS LM型(「単一縦モード」)である。これらのOPOを 使用する重要な利点は、シードダイオードレーザーの使 用がもはや必要ないからである。これは可成りの単純化 とコストの節約をもたらす。4つのOPO311、32 1、331、341を(異なる設定がなされるという理 解のもとで)いまや同一のものにすることが出来るの で、尚更そうである。

[0045] これら4つのOPO311、321、33 1、341は、それぞれに互いに同一の波長、この場合 には約355nmの波長のポンプ光P1、P2、P3、 およびP4によって、それぞれにポンピングがなされ る。この目的のために、レーザー光源システム301 は、約1064nmの光を供給するNd:YAGレーザ 一光源2から構成されている。Nd:YAGレーザー光 源2から来る光は、約355nmの波長のポンプ光Pを その出口で提供するTHG303に適用される。このポ ンプ光Pは、異なる方法で4つのOPO311、32 1、331、341に分配することが出来る。上記の例 においては、3個の部分的に反射する鏡351、352 および353と、全面的に反射する鏡354が使用され る。ポンプ光Pは、第一の部分的に反射する鏡351に 導かれ、反射された光は、第二の部分的に反射する鏡3 52に到達する。第二の鏡352によって反射された光 は、ポンプ光P1として機能し、そして伝達された光は 第三の部分的に反射する鏡353に到達する。第三の部 分的に反射する鏡353によって反射された光は、ポン プ光P2として機能し、そして伝達された光は、第4の 鏡354からの反射後に、ポンプ光P3として機能す る。

【0046】鏡に関しては、その他の配置も可能である。望ましいのは、4つのポンプビームP1、P2、P3およびP4の光の強度の割合が、4つのOPO311、321、331、341と、SHG336および346の効率を考慮に入れながら、4つの光のビームL

1、L2、L3、L4の光の強度の希望する割合に相当 するように選定されることである。

【0047】図3には、どのようにして4つの光のビーム(光線)し1、L2、L3、L4を合体させることが出来るかが、更に記載されている。この目的のために、図示された例においては、2個の全反射鏡361、364と、2個の二色鏡362、363および偏光鏡365が使用されている。光のビームし1は第二の全反射鏡365に分前される。第一の二色鏡362は光し1を伝達された光し1との組合せは、光のビームし3を伝達する第二の二色鏡363によって反射される。光し1、L2およびし2の組合せは、光のビームし3を伝達する第二の二色鏡363によって反射される。光し1、L2およびし3の組合せは、偏光鏡365を通過する。光のビームし4は、第三の全反射鏡364によって、光し4を反射する保光鏡356に反射される。

【0048】それ故、レーザービームは、プリズムおよび/または偏光に敏感な部材のような、その他の光学部材によって重ね合わせること、すなわち結合させることも出来る。

【0049】理論的には、鏡365は二色鏡とすることも出来よう。しかしながら、実際上はこれを実現することは困難である。何故ならば、この鏡は光L3を伝達し、且つL4を反射する役割を持っているが、他方においてこれら二つの光のビームの波長は、互いに極めて近いものがあるからである。従って、鏡365は偏光の行いものがあるからである。従って、鏡365は偏光の方のに直線的に伝達し、そして他のいずれの偏光方向の光も、すなわち、例えば第一の方向に対して垂直な第二の方向に直線偏光する光も、これをを反射するのである。

【0050】図3に記載された例では、0P0311、 321、331、341は、すべて水平の偏光を有する ことが望ましい。SHG336、346は、当然のこと として、出て行く波長 1/2λの光の偏光が、入って来る 波長λの光の偏光と一つの角度を構成するという特質を 持っている。この角度の大きさは、SHGの型式次第で ある。特殊な型式、すなわちここに指定されている型式 Iでは、その角度は90°であり、それ故この場合に は、L4は垂直の偏光を有する。L3もまた、適当な、 すなわち水平な偏光を有することを確保するために、 1 /2 λ 板を、例えばOPO331の後の光の通路に、出来 ることならOPO331とSHG336との間に含める ことが出来る。他の型式、すなわち指定された型式II では、その角度は45°である。当該技術に習熟した者 には、その場合にも、L3もまた水平な偏光を有するこ とを確保するために、OPO331の後の光の通路に偏 光回転部分を含めることが出来ることは明らかであろ う。「型式 I」および「型式 II」の名称の説明に関し ては、米国カリフォルニア州サンデイエゴ市、アカデミ

ック・プレス出版社の1992年刊行の、ロバートW. ボイド著の書物「Nonlinear Optic s」、ISBN0-12-121680-2の、例えば 88ページ以降を参照されたい。

【0051】図4および5は、本発明による水銀セパレ 一タ100の構造の一例の、二つの相互に垂直な側面図 を図式的に示す。セパレータ100は、図面を見やすく するために図示されていない真空ポンプによって髙真空 を適用することが出来る、水平に導かれたチューブ11 1によって限定することが出来る。チューブ111の下 方に配置されているのは、水銀原子のビームを生成する ためにチューブ111の長さに沿って配分される、少な くとも一つの、しかし、望むらくは複数の光源120で ある。このような光源はそれ自体公知であるので、これ 以上は記述しないことにする。光源120が、加熱可能 な貯蔵器を持つことが出来ることを指摘することで十分 である。生成された水銀原子は、イオン化スペースに移 行し、計画された方法で、そこで相互作用領域113を 通過して、後から詳細に説明するように、そこで原子を 励起し、光子によってイオン化することが出来る。イオ ン化されてない水銀原子は、チューブ111の最上壁部 に到達し、そこで凝縮し、そして壁部を流れ戻って再び 貯蔵器121に到達する。望ましいのは、チューブ11 1 および光源120との間のじょうご形の接続チューブ 112の壁部が、水銀の融点、すなわち−39℃の直ぐ 上の温度に冷却されることである。

【0052】チューブ111の第一の末端には、生成された光子が既述のスペース110を通して、相互作用領域113を通じて実質的に水平に移動するように、レーザー光源、例えば図2との関連で論述したレーザーシステム1、または図3との関連で論述したレーザーシステム1、または図3との関連で論述したレーザーシステム301、が配置される。生成された光子の十分に大きな部分が利用されることを確保するために、相互作用領域113の長さは、十分に大きく、出来れば1メートルより大きなものでなければならない。

陽極131、グリッド形加速器板132および捕集板133とから構成されることである。上記の高い加速電には、グリッド132と陽極131との間に適用され、では捕集板133にグリッド132より負性が少を通じたが適用され、その結果として、グリッド132をする前に減速による。その結果として、高エネルギーイオンの衝撃によされる。その結果として、高エネルギーイオンの衝撃によされるのである。グリッド132はこのような磨耗に曝されるが、その程度は少ない。何故ならば、グリッド132の透過度(開放度)に応じて、邪魔されずに当該グリッドを通過

するからである。

【0054】相互作用領域においては、レーザー光源1 の距離が増大するに連れて、レーザービームの強度が減 少する。何故ならば、吸収を通じて光子がビームから減 少するからである。もし相互作用領域113の長さが極 めて長く選定され、その結果生成されたすべての光子が 利用される(吸収される)とすれば、相互作用領域11 3の末端における強度は、極めて小さくなり、その結果 として、そこで生成されるHg原子は、効果的にはイオ ン化がなされない。そこでイオン化されるHg原子の割 合が、特に小さくなるからである。逆に、相互作用領域 113の長さが減少すると、相互作用領域113の末端 でイオン化されるHg原子の割合は増加し、同時に相互 作用領域113の末端におけるレーザービームの強度は 増大するが、これは、生成される光子の有用な吸収がま すます少なくなることを意味する。それ故、選定される べき相互作用領域113の長さは、生成される光子の効 果的な利用と、生成される水銀原子の効果的なイオン化 との間の妥協であり、その間、とりわけ一方において光 子を生成するために必要とされるエネルギーと、他方に おいて水銀原子を生成するために必要とされるエネルギ 一とを、考慮に入れなければならない。スペース110 の適切な長さは、約1mである。

【0055】上記においては、4本のレーザービームし1、L2、L3、およびL4が、イオン化プロセスにおいて励起段階の相互に異なる遷移確率を補償することが望ましいことを有することが望ましいことを相対的に弱い遷移と関連するレーザー光は、を持ちにはならず、また相互作用領域113の入口において相対的に高い強度を相対にならず、また相互作用領域113の内で相対的に強い遷移いでは、相対的に強いでは、なおも相対的にかいては、なおも相対的にから、利用されないレーザー光と比較して、なおも相対的に少しでがら、利用されないレーザーとは、なおも相対のにでは、なおも相対のにである。しかしながら、利用されないレーザーとは、はない。図面を分かりやすくするために図示されたのにので使用することによって、不使用のレーザー光は、反手の度、相互作用領域113をトラバースするために反

射させることが出来る。その代わりに、鏡によると同様に、不使用のレーザー光を、第二のイオン化スペース110(図示されていない)の相互作用領域の入口に供給することが出来る。かくてセパレータ100は、幾つかの並列されたイオン化スペース110から構成することが出来るのである。

【0056】図6および7は、プロセスという点では操作するのが単純であり、それ故に好ましい形のセパレータ400の別の実施形態を示す。図6は、セパレータ400の断面図を示す。

【0057】セパレータ100について述べて来た事項と匹敵するような形態で、セパレータ400は、水出で導かれたチューブ411によって限定することが出れている内では、水出にでおり、これに記載されていない真空ポンプによっており、これには符号420で示されている。液体水銀用の捕集槽は、一般には符号421で示されており、チューブ411の下に配置されている。水銀原子のビームは、捕集槽421から移りとする。東に、チューブ411の下側のコリメーションスリット412を経て、点線で示された相互作用領域413に412によって、点線で示された相互作用領域413に414年間領域413を通過したイオン化されていない水銀原子を捕獲するのに使用される。

【0058】図4および5との関連で論じた事項に匹敵するような形態で、チューブ411の第一の末端には、図6には単に矢印で図表的に表示されているが、相互作用領域413へ光子L1からL4を導入するために、適当なレーザー光源(例えば1または301)が配置される。

【0059】相互作用領域413で生成されたイオンは、相互作用領域413から複数の電気式抽出手段によって抽出される。これらの電気式抽出手段は、図面を分かりやすくするために記載されていない。電気式抽出手段は、図4に記載されている構造に匹敵する構造を有することが出来ることを記すことで十分である。

【0060】セパレータ400は、図示された例においては、更にチューブ411と並んで配置された第二のチューブ431によって限定される捕集チャンバー430から構成される。第二のチューブ431内に配置されたバルブ441によって閉鎖することが出来る連絡チャンネル440によって、第一のチューブ411に接続されている。連絡チャンネル440は、静電式レンズ442を備えている。

【0061】相互作用領域413から抽出された水銀イオンは、静電式レンズ442を介して捕集チャンバー430に到達し、捕集チャンバー430内で捕集スクリーン432上に捕捉される。捕集スクリーン432は、一

70℃よりも低い、極めて低い温度で保持され、その結果、捕集スクリーン432上に捕捉された水銀イオンは 捕集スクリーン432上で凍結する。

【〇〇62】これを「採取すること」、すなわち捕集ス クリーン432によって捕集された水銀を捕集スクリー ン432から除去することが望ましいときは、バルブ4 41が閉鎖され、そして捕集チャンバー430内の圧力 が、周囲圧力に等しくされた後で、とりわけ捕集チャン パー430の末端に存在する(図示されていない)ドア が開かれ、捕集スクリーン432が、その上に凍結した 水銀とともに、捕集チャンバー430から取り出され る。加熱することによって、水銀が液化するので、閉鎖 可能な容器(図示されていない)内にこれを入れること が出来る。この場合の重要な利点は、「採取」の間にイ オン化スペースが真空の状態で保持されることである。 【0063】今一つの「採取」の可能性は、熱搬送、す なわち蒸発および凝縮のプロセスを含んでいる。再び、 バルブ441が閉鎖されるが、しかし、捕集チャンバー 430は真空状態に保たれる。捕集スクリーン432は 加熱され、捕集スクリーン432上の水銀は蒸発する。 例えば捕集チャンバー430の末端に配置された採取用 部材(図示されていない)は、捕集スクリーン432か ら蒸発する水銀がその採取用の部材上で、液体または固 体(凍結)の形状で凝結するように、低温で保持され る。もし、この採取用部材が、捕集チャンバー430の 採取部分に配置されており、その採取部分をバルブによ って捕集チャンバー430の残りの部分から遮蔽するこ とが出来るときは、採取部材を取り出すときに、捕集チ ャンバー430を真空状態に保持することも可能であ

【0064】特許請求項によって定義された本発明の保護の範囲は、ここで論じられ且つ図面で示された実施形態に限定されておらず、発明概念の範囲内で、ここに示された本発明によるイオン化方法の実施形態を変更し、修正することが可能であることは、当該技術に熟達したものには明らかであろう。かくて、例えば 196 Hgの代わりに、異なる同位体を、その同位体に関連する波長を設定することによって、イオン化することも可能である。

【0065】また、本発明によるイオン化方法を同位体を濃縮するために使用せずに、サンプル中の、たとえ少量でもその同位体の存在を証明するための探索方法として、これを使用することも可能である。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明によって提案されたイオン化方法のエネルギーレベルを図式的に示した図である。

【図2】必要なレーザービームを発生させるための配置 を図式的に示した図である。

【図3】必要なレーザービームを発生させるための別の

【図4】本方法を実施するための装置の構造を図式的に示した図である。

【図5】本方法を実施するための装置の構造を図式的に 示した図である。

【図6】本方法を実施するための別の装置の構造を図式的に示した図である。

【図7】上記と同様の図である。

【符号説明】

A…第一の励起レベル

B…第二の励起レベル

C 1…第三の励起レベル

C 2…第三の励起レベル

D…自動イオン化レベル

L1、L2、L3、L4…レーザービーム、光子

P、P1、P2、P3、P4…ポンプ光、ポンプビーム

S1、S2、S3、S4…シード光

1…レーザー光線システム

2…ポンプレーザー光線、ポンプレーザー光源

10、20、30、40…レーザー光源

11, 21, 31, 41...OPO

12…シードダイオードレーザー

22…シードダイオードレーザー

23…THG (第三高調波発生器)

2 4…鏡

26…SHG (第二高調波発生器)

32…シードダイオードレーザー

33...SHG

3 4…鏡

3 5 …鏡

36...THG

42…シードダイオードレーザー

45…鏡

46...THG

100、400…セパレータ

110、410…イオン化スペース

1 1 1 、 1 1 2 、 4 1 1 …壁部、手段、ケーシング、チューブ

113、413…相互作用領域

120、420…線源

121…貯蔵器

130…電気式抽出手段

131…陽極

132…グリッド、加速器グリッド、グリッド加速器板

133…捕集板、陰極

301…レーザー光線システム

303...THG

310、320、330、340…レーザー光源

311, 321, 331, 341...OPO

 $\texttt{336} \cdots \texttt{SHG}$

3 4 6 ··· S H G

351、352、353、354…鏡

361、364…全反射鏡

362、363…二色鏡

365…偏光鏡

400…セパレータ

412…コリメーションスリット

4 1 3 …相互作用領域

414…スクリーン

421…捕集槽

430…捕集チャンバ

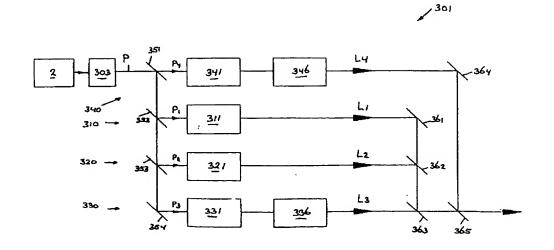
432…捕集スクリーン

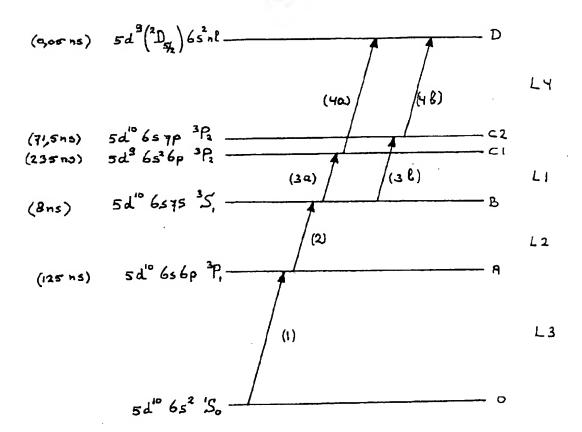
440…連絡チャンネル

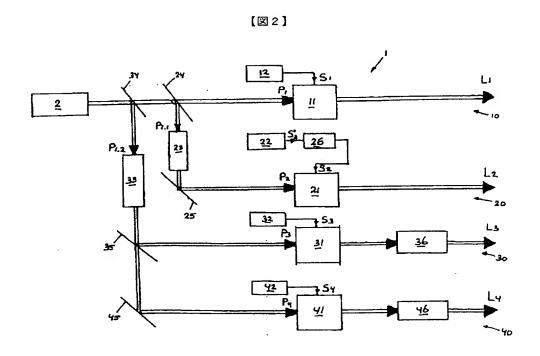
441…バルブ

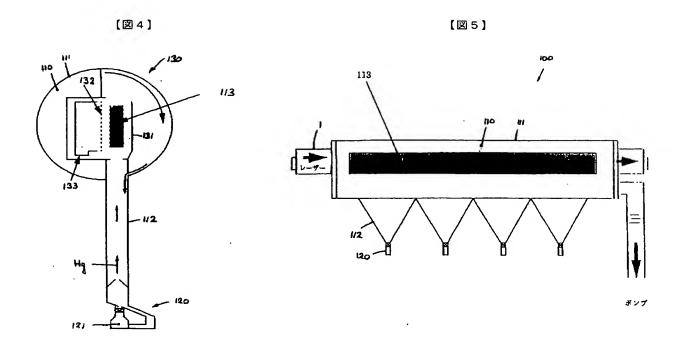
4 4 2 …静電式レンズ

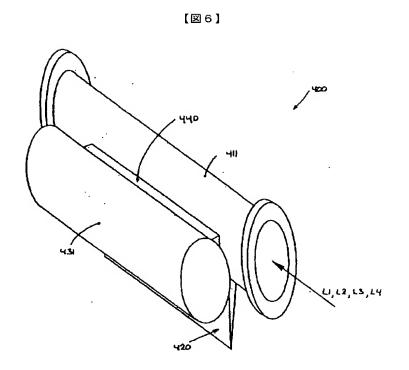
[図3]

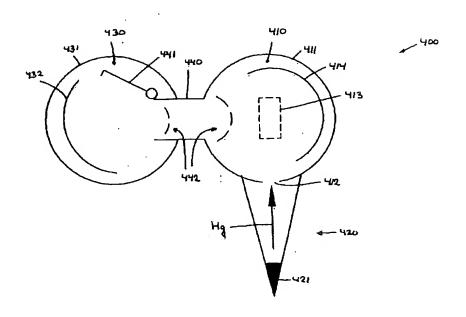












フロントページの続き

(72) 発明者 エルヴィン、アントニウス、ヨゼフス、マ (72) 発明者 ヴィレム、ホーガーヴォルスト ーリア、ベンテ オランダ、3813、セペ、アメルスフォール ト、エジディウスホフ、4

オランダ、3743、エハ、バールン、レース トラート、3

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

□ BLACK BORDERS
□ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
□ FADED TEXT OR DRAWING
□ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
□ SKEWED/SLANTED IMAGES
□ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
□ GRAY SCALE DOCUMENTS
□ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
□ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
□ OTHER:

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.